

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平8-26831

(43)公開日 平成8年(1996)1月30日

(51)Int.Cl.<sup>8</sup>

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

C 0 4 B 35/593

C 0 4 B 35/ 58

1 0 2 U

審査請求 未請求 請求項の数1 F D (全 4 頁)

(21)出願番号

特願平6-177729

(22)出願日

平成6年(1994)7月7日

(71)出願人 000004190

日本セメント株式会社

東京都千代田区大手町1丁目6番1号

(72)発明者 浅井 義博

千葉県船橋市栄町1-4-6

(72)発明者 西 芳次

東京都新宿区大京町7

(72)発明者 塩貝 達也

東京都北区浮間1-3-1-508

(54)【発明の名称】 窒化けい素焼結体の製造方法

(57)【要約】

【目的】 工業用ミラー、成形用型等に使用可能な表面が極めて平滑な焼結体が得られる窒化けい素焼結体の製造方法を提供すること。

【構成】 常圧焼成した焼結体が、開気孔率で0.5%以下で、かつ焼結体中の $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ 相と $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ 相の構成比が $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4/\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ で0.1以上の仮焼体となるように常圧焼成し、その仮焼体を熱間静水圧加圧処理することとした窒化けい素焼結体の製造方法。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 原料を混合して成形し、その成形体を常圧焼成した後、常圧焼成した焼結体をさらに加圧焼成処理する窒化けい素焼結体の製造方法において、該常圧焼成した焼結体が、開気孔率が0.5%以下で、かつ焼結体中の $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ 相と $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ 相の構成比が $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4/\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ で0.1以上の仮焼体となるように常圧焼成し、その仮焼体を熱間静水圧加圧処理することを特徴とする窒化けい素焼結体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、窒化けい素焼結体の製造方法に関し、特に極めてポアの少ない平滑な表面を有する窒化けい素焼結体の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】窒化けい素焼結体は、機械的強度、硬度、耐熱性に優れているとともに剛性が高く熱膨張係数も小さいことから、工業用ミラー、成形用型等の材料に使用することが検討されている。この窒化けい素焼結体を工業用ミラー、成形用型等に用いる場合は、研磨した焼結体の表面が欠陥のない、言い替えれば大径のポアがほとんどない平滑な焼結体とすることを要求されている。

【0003】これら工業用ミラー、成形用型の材料に検討されている窒化けい素焼結体は、一般に、窒化けい素粉末に $\text{Y}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{MgO}$ 等の焼結助剤を添加し常圧焼成した後、焼成した焼結体の表面にまだ多くのポアが残存しているため、これをさらに熱間静水圧加圧(HIP)処理することにより、ポアを低減して表面の平滑性を改善する方法が採られている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、常圧焼成後さらにHIP処理しても焼結体の表面には、依然として大径のポアがかなり残存しており、工業用ミラー、成形用型等に使用可能な平滑な表面を満足する焼結体が得られなかった。

【0005】本発明は、上述した従来の窒化けい素焼結体の製造方法が有する課題に鑑みなされたものであって、その目的は、工業用ミラー、成形用型等に使用できる研磨した表面が極めてポアの少ない平滑な焼結体が得られる窒化けい素焼結体の製造方法を提供することにある。

【0006】

【課題を解決するための手段】本発明者等は、上記目的を達成するため鋭意研究した結果、常圧焼成した焼結体を、完全に焼結する手前の仮焼体にとどめ、その仮焼体をHIP処理する製造方法を採用することにより、大径のポアがほとんどない平滑な表面を有する焼結体が得られるとの知見を得て本発明を完成した。

【0007】上記仮焼体としては、開気孔率が0.5%

以下で、かつ仮焼体中の $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ 相と $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ 相の構成比が $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4/\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ で0.1以上の仮焼体とし、それをHIP処理する製造方法とした。

【0008】開気孔率が0.5%を越えると、HIP処理しても完全に緻密化しないで大径のポアが多く残存してしまう。また、 $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4/\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ が0.1を下回ると仮焼体の開気孔率は大きく減るが、HIP処理しても常圧焼成で残存したポアは減らずに大径のポアが多く残ってしまう。

【0009】これは、仮焼体が $\alpha$ 相の少ない、 $\beta$ 相にほとんど転移している仮焼体であるため、HIP処理しても残存したポアをガス圧力で押し潰す効果だけにより減らすものと思われる。これが本発明のように、常圧焼成した仮焼体を、開気孔率が0.5%以下で、かつ焼結体中の $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4/\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ が0.1以上の仮焼体にとどめれば、次のHIP処理の段階で残存ポアを押し潰す作用に加え、同時に $\beta$ 相に転移していない $\alpha$ 相の結晶が $\beta$ 相に転移する際にポアを埋める作用も起こることによって、ポアを大幅に減らすものと思われる。

【0010】本発明の窒化けい素焼結体の製造方法をさらに詳細に述べると、平均粒径が $1\mu\text{m}$ 以下の $\alpha$ 型の窒化けい素粉末と、焼成助剤として $\text{Y}_2\text{O}_3$ 等の希土類元素酸化物、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{MgO}$ 等の1種以上の粉末を原料として用い、これら原料を慣用の方法で混合、成形し、窒素雰囲気中で常圧焼成する。焼成温度は焼結助剤の種類及び量によって変るが、完全には緻密化しない $1450\sim 1650^\circ\text{C}$ が好ましい。

【0011】 $1450^\circ\text{C}$ より低いと仮焼体の開気孔率が0.5%より大きくなり、後のHIP処理による緻密化が進みにくい。 $1650^\circ\text{C}$ より高いと仮焼体の開気孔率は0.5%より小さくなるが、 $\alpha$ 相/ $\beta$ 相の比が0.1より小さくなってしまい大径のポアが残存してしまう。このようにHIP処理する前の焼結体として、開気孔率が0.5%以下で、 $\alpha$ 相/ $\beta$ 相の比で0.1以上の仮焼体にする必要がある。

【0012】常圧焼成した後のHIP処理としては、 $500\text{kg}/\text{cm}^2$ 以上の圧力で、常圧焼成する温度の $100^\circ\text{C}$ 程度低い温度以上で処理することが望ましい。

【0013】以上述べた通り、常圧焼成では、焼成した焼結体を完全に焼結する手前の仮焼体にとどめ、その仮焼体をHIP処理することにより、表面が大径のポアが極めて少ない平滑な窒化けい素焼結体を得ることができる。

【0014】

【実施例】以下、本発明の実施例を比較例と共に挙げ、本発明をより詳細に説明する。

【0015】(実施例1～5)

(1) 常圧焼成

原料として平均粒径が $0.7\mu\text{m}$ の $\alpha$ 型窒化けい素粉末に、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 粉末、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 粉末、 $\text{MgO}$ 粉末を表1に示

す量で加え、メタノールを分散媒としてポットミルで混合後乾燥した。乾燥した粉末をプレス成形して直径50mm、厚さ10mmの成形体を作製した。この成形体を窒素雰囲気下で表1に示す温度で3時間焼成した。

#### 【0016】(2) HIP処理

常圧焼成した仮焼体を、窒素雰囲気下にて1000kg/cm<sup>2</sup>の圧力で、1600℃の温度でHIP処理した。

#### 【0017】(3) 表面仕上げ

得られた焼結体の表面を、平面研削し、ラッピングした後、粒径が1μmのダイヤモンド砥粒でポリッシングして表面仕上げした。

#### 【0018】(4) 評価

常圧焼成した仮焼体の開気孔率はアルキメデス法により測定し、α相/β相の比はX線回折により測定した。HIP処理した焼結体の表面仕上げした表面は、顕微鏡で

観察して5μm以上のポアの数調べ、また、表面粗さ計により表面粗さの測定を行った。それらの結果を表1に示す。

#### 【0019】(比較例1～5)

##### (1) 常圧焼成

比較のために、原料として平均粒径が0.7μmのα型窒化けい素粉末に、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉末、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉末、MgO粉末を表1に示す量で加え、実施例と同様に混合後乾燥した後、乾燥した粉末を実施例と同様に成形体を作製した。この成形体を窒素雰囲気下で表1に示す温度で3時間焼成した。

【0020】上記の常圧焼成以外のHIP処理、表面仕上げ、評価については実施例と同じ方法で処理し、仕上げし、評価した。それらの結果を表1に示す。

#### 【0021】

【表1】

		焼結助剤添加量			常圧 焼成 温度 ℃	常圧焼成した仮焼体		ポア数 個 /mm <sup>2</sup>	面粗さ Ra nm
		Y2O3 wt%	MgO wt%	Al2O3 wt%		開気孔率 %	α/β		
実 施 例	1	6.0	—	6.0	1640	0.41	0.1	8	1.1
	2	5.0	1.5	3.5	1450	0.45	2.5	10	1.0
	3	5.0	1.5	3.5	1600	0.03	0.2	1	0.6
	4	6.0	1.3	2.7	1550	0.12	0.5	1	0.4
	5	4.0	2.0	4.0	1500	0.18	0.8	5	0.7
比 較 例	1	5.0	1.5	3.5	1420	0.68	3.5	52	2.0
	2	5.0	1.5	3.5	1680	0.01	0.0	26	1.8
	3	6.0	1.3	2.7	1700	0.01	0.0	38	2.6
	4	6.0	—	6.0	1700	0.00	0.0	108	2.6
	5	4.0	2.0	4.0	1700	0.01	0.0	85	3.5

【0022】表1から明らかなように、実施例1～5においては、常圧焼成する温度が適切であるため、常圧焼成した仮焼体が、本発明の範囲内、即ち、開気孔率が0.5%以下、α相/β相の比が0.1以上にある仮焼体となっている。そのため、HIP処理した焼結体の5μm以上のポア数は、10個以下と極めて少なくなっている。また、表面粗さもRaで1.1nm以下と非常に平滑になっている。

【0023】これに対して本発明の範囲外、即ち、開気孔率が0.5%を超える仮焼体では、5μm以上のポア数が大幅に増え、表面粗さも粗くなっている。(比較例1)。また、α相/β相の比が0.1より小さい仮焼

体も同様に5μm以上のポア数が大幅に増え、表面粗さも粗くなっている。(比較例2～5)。このように、常圧焼成した仮焼体が本発明の範囲内ないと、HIP処理しても表面が大径のポアが少ない平滑な焼結体は得られなくなる。

#### 【0024】

【発明の効果】以上の通り、本発明にかかる窒化けい素焼結体の製造方法によれば、常圧焼成した焼結体を、完全に焼結する手前の仮焼体にとどめ、その仮焼体をHIP処理することにより、研磨した表面が、大径のポアが極めて少ない平滑な焼結体を得ることができ、これにより、工業用ミラー、成形用型等の材料に優れた材料とし

て提供することができます。